

Translation

PATENT COOPERATION TREATY

PCT/EP2003/003548



PCT
To Rec'd PCT/PTO

20 SEP 2004

INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

(PCT Article 36 and Rule 70)

Applicant's or agent's file reference M/40054-PCT	FOR FURTHER ACTION See Notification of Transmittal of International Preliminary Examination Report (Form PCT/IPEA/416)	
International application No. PCT/EP2003/003548	International filing date (day/month/year) 04 April 2003 (04.04.2003)	Priority date (day/month/year) 05 April 2002 (05.04.2002)
International Patent Classification (IPC) or national classification and IPC C08F 8/30		
Applicant BASF AKTIENGESELLSCHAFT		

1. This international preliminary examination report has been prepared by this International Preliminary Examining Authority and is transmitted to the applicant according to Article 36.
2. This REPORT consists of a total of 4 sheets, including this cover sheet.
- ☒ This report is also accompanied by ANNEXES, i.e., sheets of the description, claims and/or drawings which have been amended and are the basis for this report and/or sheets containing rectifications made before this Authority (see Rule 70.16 and Section 607 of the Administrative Instructions under the PCT).
- These annexes consist of a total of 5 sheets.

3. This report contains indications relating to the following items:

- I ☒ Basis of the report
- II ☐ Priority
- III ☐ Non-establishment of opinion with regard to novelty, inventive step and industrial applicability
- IV ☐ Lack of unity of invention
- V ☒ Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement
- VI ☐ Certain documents cited
- VII ☐ Certain defects in the international application
- VIII ☐ Certain observations on the international application

Date of submission of the demand 05 October 2003 (05.10.2003)	Date of completion of this report 15 June 2004 (15.06.2004)
Name and mailing address of the IPEA/EP	Authorized officer
Facsimile No.	Telephone No.

INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No.

PCT/EP2003/003548

I. Basis of the report

1. With regard to the elements of the international application:*

- ☐ the international application as originally filed
- ☒ the description:
pages _____ 1-23 _____, as originally filed
pages _____, filed with the demand
pages _____, filed with the letter of _____
- ☒ the claims:
pages _____, as originally filed
pages _____, as amended (together with any statement under Article 19
pages _____, filed with the demand
pages _____ 1-14 _____, filed with the letter of _____ 22 January 2004 (22.01.2004)
- ☐ the drawings:
pages _____, as originally filed
pages _____, filed with the demand
pages _____, filed with the letter of _____
- ☐ the sequence listing part of the description:
pages _____, as originally filed
pages _____, filed with the demand
pages _____, filed with the letter of _____

2. With regard to the language, all the elements marked above were available or furnished to this Authority in the language in which the international application was filed, unless otherwise indicated under this item.

These elements were available or furnished to this Authority in the following language _____ which is:

- ☐ the language of a translation furnished for the purposes of international search (under Rule 23.1(b)).
- ☐ the language of publication of the international application (under Rule 48.3(b)).
- ☐ the language of the translation furnished for the purposes of international preliminary examination (under Rule 55.2 and/or 55.3).

3. With regard to any nucleotide and/or amino acid sequence disclosed in the international application, the international preliminary examination was carried out on the basis of the sequence listing:

- ☐ contained in the international application in written form.
- ☐ filed together with the international application in computer readable form.
- ☐ furnished subsequently to this Authority in written form.
- ☐ furnished subsequently to this Authority in computer readable form.
- ☐ The statement that the subsequently furnished written sequence listing does not go beyond the disclosure in the international application as filed has been furnished.
- ☐ The statement that the information recorded in computer readable form is identical to the written sequence listing has been furnished.

4. ☐ The amendments have resulted in the cancellation of:

- ☐ the description, pages _____
- ☐ the claims, Nos. _____
- ☐ the drawings, sheets/fig _____

5. ☐ This report has been established as if (some of) the amendments had not been made, since they have been considered to go beyond the disclosure as filed, as indicated in the Supplemental Box (Rule 70.2(c)).**

* Replacement sheets which have been furnished to the receiving Office in response to an invitation under Article 14 are referred to in this report as "originally filed" and are not annexed to this report since they do not contain amendments (Rule 70.16 and 70.17).

** Any replacement sheet containing such amendments must be referred to under item 1 and annexed to this report.

INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No.

PCT/EP 03/03548

V. Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement**1. Statement**

Novelty (N)	Claims	1-14	YES
	Claims		NO
Inventive step (IS)	Claims	1-14	YES
	Claims		NO
Industrial applicability (IA)	Claims	1-14	YES
	Claims		NO

2. Citations and explanations

This report refers to the following documents:

D1: WO-A-00/32650

D2: WO-A-97/03946

D5: WO-A-98/20053

D6: DATABASE CA [Online] CHEMICAL ABSTRACTS SERVICE, COLUMBUS, OHIO; KENNEDY, J.P. ET AL.: "Living carbocationic polymerization. XXXIX. Isobutylene polymerization in the presence of pyridine and various other electron donors" XP002250662 found in the STN Database, accession no. 114:164917

D7: DATABASE CA [Online] CHEMICAL ABSTRACTS SERVICE, COLUMBUS, OHIO; KASZAS, GABOR ET AL.: "Electron pair donors in carbocationic polymerization. I. Introduction into the synthesis of narrow molecular-weight-distribution poly(isobutylenes)" XP002250663 found in the STN Database, accession no. 110:95845.

1. The subject matter of claims 1-14 is novel in relation to documents D1, D2 and D5 to D7 because none of these documents discloses a combination of all the technical features of these claims (PCT Article 33(2)).

2. The inventive step in arriving at the subject matter of these claims is likewise established because the specific combination of the technical features indicated in these claims, as a solution to the basic problem addressed by the present application, cannot be derived in an obvious way either from any single document cited or even from a combination of citations (PCT Article 33(3)).
3. Industrial applicability is established (PCT Article 33(4)).

VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS

PCT 10 Rec'd PCT/TC 20 SEP 2004

INTERNATIONALER VORLÄUFIGER PRÜFUNGSBERICHT

(Artikel 36 und Regel 70 PCT)

REC'D 16 JUN 2004

Aktenzeichen des Anmelders oder Anwalts M/40054-PCT	WEITERES VORGEHEN siehe Mitteilung über die Übersendung des internationalen vorläufigen Prüfungsberichts (Formblatt PCT/PEA/416)	
Internationales Aktenzeichen PCT/EP 03/03548	Internationales Anmeldedatum (Tag/Monat/Jahr) 04.04.2003	Prioritätsdatum (Tag/Monat/Jahr) 05.04.2002
Internationale Patentklassifikation (IPK) oder nationale Klassifikation und IPK C08F8/30, C08F8/30		
Anmelder BASF AKTIENGESELLSCHAFT		

1. Dieser internationale vorläufige Prüfungsbericht wurde von der mit der internationalen vorläufigen Prüfung beauftragten Behörde erstellt und wird dem Anmelder gemäß Artikel 36 übermittelt.



2. Dieser BERICHT umfaßt insgesamt 4 Blätter einschließlich dieses Deckblatts.

- ☒ Außerdem liegen dem Bericht ANLAGEN bei; dabei handelt es sich um Blätter mit Beschreibungen, Ansprüchen und/oder Zeichnungen, die geändert wurden und diesem Bericht zugrunde liegen, und/oder Blätter mit vor dieser Behörde vorgenommenen Berichtigungen (siehe Regel 70.16 und Abschnitt 607 der Verwaltungsrichtlinien zum PCT).

Diese Anlagen umfassen insgesamt 5 Blätter.

3. Dieser Bericht enthält Angaben zu folgenden Punkten:

- I ☒ Grundlage des Bescheids
- II ☐ Priorität
- III ☐ Keine Erstellung eines Gutachtens über Neuheit, erfinderische Tätigkeit und gewerbliche Anwendbarkeit
- IV ☐ Mangelnde Einheitlichkeit der Erfindung
- V ☒ Begründete Feststellung nach Regel 66.2 a)ii) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung
- VI ☐ Bestimmte angeführte Unterlagen
- VII ☐ Bestimmte Mängel der internationalen Anmeldung
- VIII ☐ Bestimmte Bemerkungen zur internationalen Anmeldung

Datum der Einreichung des Antrags 04.11.2003	Datum der Fertigstellung dieses Berichts 15.06.2004
Name und Postanschrift der mit der internationalen Prüfung beauftragten Behörde  Europäisches Patentamt D-80298 München Tel. +49 89 2399 - 0 Tx: 523656 epmu d Fax: +49 89 2399 - 4465	Bevollmächtigter Bediensteter Hollender, C Tel. +49 89 2399-8165 

I. Grundlage des Berichts

1. Hinsichtlich der **Bestandteile** der internationalen Anmeldung (*Ersatzblätter, die dem Anmeldeamt auf eine Aufforderung nach Artikel 14 hin vorgelegt wurden, gelten im Rahmen dieses Berichts als "ursprünglich eingereicht" und sind ihm nicht beigefügt, weil sie keine Änderungen enthalten (Regeln 70.16 und 70.17)*):

Beschreibung, Seiten

1-23 in der ursprünglich eingereichten Fassung

Ansprüche, Nr.

1-14 eingegangen am 22.01.2004 mit Schreiben vom 20.01.2004

2. Hinsichtlich der **Sprache**: Alle vorstehend genannten Bestandteile standen der Behörde in der Sprache, in der die internationale Anmeldung eingereicht worden ist, zur Verfügung oder wurden in dieser eingereicht, sofern unter diesem Punkt nichts anderes angegeben ist.

Die Bestandteile standen der Behörde in der Sprache: zur Verfügung bzw. wurden in dieser Sprache eingereicht; dabei handelt es sich um:

- ☐ die Sprache der Übersetzung, die für die Zwecke der internationalen Recherche eingereicht worden ist (nach Regel 23.1(b)).
- ☐ die Veröffentlichungssprache der internationalen Anmeldung (nach Regel 48.3(b)).
- ☐ die Sprache der Übersetzung, die für die Zwecke der internationalen vorläufigen Prüfung eingereicht worden ist (nach Regel 55.2 und/oder 55.3).

3. Hinsichtlich der in der internationalen Anmeldung offenbarten **Nucleotid- und/oder Aminosäuresequenz** ist die internationale vorläufige Prüfung auf der Grundlage des Sequenzprotokolls durchgeführt worden, das:

- ☐ in der internationalen Anmeldung in schriftlicher Form enthalten ist.
- ☐ zusammen mit der internationalen Anmeldung in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.
- ☐ bei der Behörde nachträglich in schriftlicher Form eingereicht worden ist.
- ☐ bei der Behörde nachträglich in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.
- ☐ Die Erklärung, daß das nachträglich eingereichte schriftliche Sequenzprotokoll nicht über den Offenbarungsgehalt der internationalen Anmeldung im Anmeldezeitpunkt hinausgeht, wurde vorgelegt.
- ☐ Die Erklärung, daß die in computerlesbarer Form erfassten Informationen dem schriftlichen Sequenzprotokoll entsprechen, wurde vorgelegt.

4. Aufgrund der Änderungen sind folgende Unterlagen fortgefallen:

- ☐ Beschreibung, Seiten:
- ☐ Ansprüche, Nr.:
- ☐ Zeichnungen, Blatt:

5. ☐ Dieser Bericht ist ohne Berücksichtigung (von einigen) der Änderungen erstellt worden, da diese aus den angegebenen Gründen nach Auffassung der Behörde über den Offenbarungsgehalt in der ursprünglich eingereichten Fassung hinausgehen (Regel 70.2(c)).

(Auf Ersatzblätter, die solche Änderungen enthalten, ist unter Punkt 1 hinzuweisen; sie sind diesem Bericht beizufügen.)

**INTERNATIONALER VORLÄUFIGER
PRÜFUNGSBERICHT**

Internationales Aktenzeichen PCT/EP 03/03548

6. Etwaige zusätzliche Bemerkungen:

V. Begründete Feststellung nach Artikel 35(2) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung

- | | |
|--------------------------------|---|
| 1. Feststellung | |
| Neuheit (N) | Ja: Ansprüche 1-14
Nein: Ansprüche |
| Erfinderische Tätigkeit (IS) | Ja: Ansprüche 1-14
Nein: Ansprüche |
| Gewerbliche Anwendbarkeit (IA) | Ja: Ansprüche: 1-14
Nein: Ansprüche: |

2. Unterlagen und Erklärungen:

siehe Beiblatt

Zu Punkt V

Begründete Feststellung hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung

Es wird auf die folgende Dokumente verwiesen:

D1: WO-A-00/32650

D2: WO-A-97/03946

D5: WO-A-98/20053

D6: DATABASE CA [Online] CHEMICAL ABSTRACTS SERVICE, COLUMBUS, OHIO, US; KENNEDY, J. P. ET AL: "Living carbocationic polymerization. XXXIX. Isobutylene polymerization in the presence of pyridine and various other electron donors" XP002250662 gefunden im STN Database accession no. 114:164917

D7: DATABASE CA [Online] CHEMICAL ABSTRACTS SERVICE, COLUMBUS, OHIO, US; KASZAS, GABOR ET AL: "Electron pair donors in carbocationic polymerization. I. Introduction into the synthesis of narrow molecular-weight-distribution poly(isobutylenes)" XP002250663 gefunden im STN Database accession no. 110:95845

1. Der Gegenstand der Ansprüche 1-14 ist neu gegenüber den Dokumenten D1, D2 und D5 bis D7, da in keiner dieser Dokumente eine Kombination aller technischen Merkmale dieser Ansprüche offenbart wird (Art. 33(2) PCT).
2. Ebenso ist die erfinderische Tätigkeit des Gegenstandes dieser Ansprüche gegeben, da die spezifische Kombination der technischen Merkmale dieser Ansprüche, zur Lösung der Aufgabe die der vorliegenden Anmeldung zu Grunde liegt (vgl. Seite 2, Zeilen 25-36), nicht in naheliegender Weise entweder aus einer einzelnen Entgegenhaltung oder sogar einer Kombination von Entgegenhaltungen abgeleitet werden kann (Art. 33(3) PCT).
3. Die gewerbliche Anwendbarkeit ist gegeben (Art. 33(4) PCT).

Patentansprüche

1. Polyisobutenamine der allgemeinen Formel I:

5

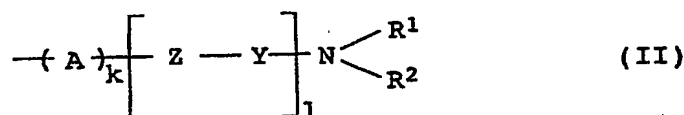


10

worin R für einen Polyisobutenylrest mit einem zahlenmittleren Molekulargewicht \bar{M}_N im Bereich von 500 bis 1500 steht, der eine Polydispersität \bar{M}_W/\bar{M}_N von höchstens 1,3 aufweist und

X für einen Rest der allgemeinen Formel II steht:

15



20

worin k und l unabhängig voneinander 0 oder 1 bedeuten,

A Methylen oder Phenylen bedeutet,

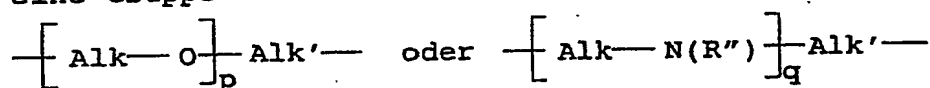
Z für Sauerstoff oder NR' steht, worin

25

R' Wasserstoff, Alkyl, Hydroxyalkyl, Aminoalkyl, Cycloalkyl, Aryl, Aralkyl oder eine Gruppe $-Y-NR^1R^2$ bedeutet,

$-Y-$ eine Gruppe

30



35

bedeutet, worin Alk für C_2-C_4 -Alkylen steht, p und q unabhängig voneinander für eine ganze Zahl von 0 bis 25 und R'' für Wasserstoff, Alkyl oder Aryl stehen, und Alk' für Alkylen, das durch 1, 2 oder 3 nicht benachbarte Sauerstoffatome unterbrochen sein kann oder für Cycloalkylen steht,

40

R^1 und R^2 unabhängig voneinander für Wasserstoff, Alkyl, Cycloalkyl, Hydroxyalkyl, Aryl oder Aralkyl oder eine Gruppe $Y-NR^3R^4$ steht, worin Y die zuvor genannten Bedeutungen hat und R^3 , R^4 unabhängig voneinander für Wasserstoff, Alkyl, Cycloalkyl, Hydroxyalkyl, Aryl oder Aralkyl stehen, R^3 und R^4 zusammen mit dem Stickstoffatom, an das sie gebunden sind, einen gegebenenfalls substituierten, gesättigten Heterocyclus bilden, der gegebenenfalls ein

45

GEÄNDERTES BLATT

22-01-2004

weiteres Heteroatom, ausgewählt unter Sauerstoff und Stickstoff, enthält,

R^1 und/oder R^2 auch für R oder $-CH_2-R$ stehen kann, sofern $l = 0$ ist, wobei R die oben angegebene Bedeutung besitzt, oder

R^1 und R^2 zusammen mit dem Stickstoffatom, an das sie gebunden sind, einen gegebenenfalls substituierten, gesättigten Heterocyclus bilden, der gegebenenfalls ein weiteres Heteroatom, ausgewählt unter Sauerstoff und Stickstoff, enthält.

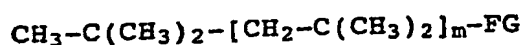
2. Polyisobutenamine nach Anspruch 1, worin R^1 und R^2 unabhängig voneinander ausgewählt sind unter Wasserstoff, C_1-C_6 -Alkyl, Phenyl, 2-Hydroxyethyl, 2-Aminoethyl, 3-Aminopropyl, 2-Di- $(C_1-C_4$ -alkyl)aminoethyl, 3-Di- $(C_1-C_4$ -alkyl)aminopropyl, oder Resten der Formel $[CH_2-CH_2-O]_{p'}-CH_2-CH_2OH$ und $[CH_2-CH_2-NH]_{q'}-CH_2-CH_2NH_2$, oder worin NR^1R^2 für einen Piperidin-, Piperazin-, N- $(C_1-C_4$ -Alkyl)piperazin- oder einen Morpholin-Rest steht und p' und q' unabhängig voneinander für eine Zahl von 1 bis 20 stehen.

3. Verfahren zur Herstellung von Polyisobutenaminen der allgemeinen Formel I gemäss einem der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, dass man

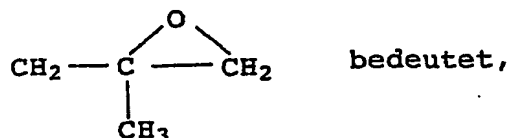
i) Isobuten in Gegenwart eines Initiatorsystems, umfassend

a) eine Lewis-Säure, ausgewählt unter kovalenten Metallchloriden und Halbmetallchloriden,

b) und wenigstens eine Verbindung der allgemeinen Formel III,



worin m für 0, 1, 2, 3 oder 4 steht und FG Halogen, OH, Alkyloxy, Acyloxy, $CH_2C(CH_3)CH_2OH$ oder eine Gruppe



in einem gegenüber der Lewis-Säure inerten Lösungsmittel bei einem Molverhältnis von Lewissäure zu Verbindung III im Bereich von 5:1 bis 1:20 polymerisiert, wobei man ein

Polyisobuten mit einem Gehalt olefinischer Endgruppen von wenigstens 80 Mol% erhält, das ein zahlenmittleres Molekulargewicht \bar{M}_N im Bereich von 500 bis 1300 und eine Polydispersität \bar{M}_W/\bar{M}_N von höchstens 1,3 aufweist,

5

ii) an den olefinischen Doppelbindungen des in Schritt i) erhaltenen Polyisobutens einen Aminogruppen aufweisenden Rest in an sich bekannter Weise einführt.

- 10 4. Verfahren nach Anspruch 3, dadurch gekennzeichnet, dass man die Verbindung III in einer Menge von 0,02 bis 0,3 mol je mol Isobuten einsetzt.
- 15 5. Verfahren nach Anspruch 3 oder 4, dadurch gekennzeichnet, daß die Lewis-Säure ausgewählt ist unter Titan(IV)chlorid und Bortrichlorid.
- 20 6. Verfahren nach einem der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, dass das Initiatorsystem zusätzlich wenigstens eine aprotisch polare Verbindung IV aufweist, die zur Komplexbildung mit der Lewis-Säure oder dem unter Reaktionsbedingungen gebildeten Carbokation oder kationogenen Komplex aus Lewis-Säure und Verbindung III geeignet ist.
- 25 7. Verfahren nach Anspruch 6, dadurch gekennzeichnet, dass die Verbindung IV ausgewählt ist unter Pyridin, Alkylpyridinen und nicht polymerisierbaren, aprotischen siliziumorganischen Verbindungen mit wenigstens einer Si-O-Bindung.
- 30 8. Verfahren nach einem der Ansprüche 6 oder 7, dadurch gekennzeichnet, dass man die Verbindung IV und die Verbindung III in einem Molverhältnis von IV:III im Bereich von 1:1 bis 1:1000 einsetzt.
- 35 9. Verfahren nach einem der Ansprüche 3 bis 8, dadurch gekennzeichnet, dass das Lösungsmittel für die Polymerisation ausgewählt ist unter Kohlenwasserstoffen mit 2 bis 10 C-Atomen, inerten Halogenkohlenwasserstoffen 1 bis 3 C-Atomen und deren Mischungen.
- 40 10. Verfahren nach einem der Ansprüche 3 bis 9, dadurch gekennzeichnet, daß man zur Gewinnung der Polyisobutene das Lösungsmittel bei Temperaturen von wenigstens 150°C entfernt.
- 45 11. Verfahren nach einem der Ansprüche 3 bis 10, dadurch gekennzeichnet, daß man die funktionelle Gruppe X in Schritt ii) durch Umsetzung des in Schritt i) erhaltenen Polyisobutens

GEÄNDERTES BLATT

22-01-2004

gemäß einem der nachfolgenden Verfahren (1) bis (7) und gegebenenfalls eine sich anschließende Alkoxylierung einführt:

- 5 (1) Hydroformylierung des Polyisobutens mit nachfolgender reduktiver Aminierung des Hydroformylierungsprodukts in Gegenwart von Ammoniak, Aminen oder Aminoalkoholen sowie Hydroformylierung des Polyisobutens in Gegenwart von Ammoniak, Aminen oder Aminoalkoholen unter reduzierenden Bedingungen;
- 10 (2) Hydroborierung des Polyisobutens mit anschließender oxidativer Spaltung des Boran-Addukts und nachfolgender reduktiver Aminierung in Gegenwart von Ammoniak, Aminen oder Aminoalkoholen;
- 15 (3) Hydroborierung oder Hydroformylierung unter reduzierenden Bedingungen zu einem Polyisobutenyl-Alkohol, gefolgt von einer Alkoxylierung und einer reduktiven Aminierung in Gegenwart von Ammoniak, Aminen oder Aminoalkoholen;
- 20 (4) Umsetzung des Polyisobutens mit einem Stickoxid-haltigen Oxidans und anschließende Reduktion der so eingeführten NO_x -Gruppen zu NH_2 -Gruppen;
- 25 (5) Epoxidierung des Polyisobutens und anschließende Umsetzung des Epoxidierungsprodukts mit Ammoniak, einem Amin oder einem Aminoalkohol mit anschließender oder gleichzeitiger Eliminierung von Wasser und katalytischer Reduktion;
- 30 (6) Hydrocyanierung des Polyisobutens unter saurer Katalyse und anschließende Hydrolyse im Sinne einer Ritter-Reaktion oder;
- 35 (7) Umsetzung mit Phenol unter Friedel-Crafts-Bedingungen und nachfolgende Umsetzung des Polyisobutenylphenols mit Formaldehyd und Amin im Sinne einer Mannich-Reaktion.
- 40 12. Verwendung eines Polyisobutenamins gemäß Anspruch 1 als Detergensadditiv in Kraftstoffzusammensetzungen.
- 45 13. Additiv-Konzentrat, enthaltend neben üblichen Additivkomponenten wenigstens ein Polyisobutenamin gemäß Anspruch 1 in Mengen von 0,1 bis 80 Gew.-%.

GEÄNDERTES BLATT

14. Kraftstoffzusammensetzung, enthaltend eine Hauptmenge eines flüssigen Kohlenwasserstoffkraftstoffs sowie eine detergentsaktive und/oder viskositätsverbessernde Menge wenigstens eines Polyisobutenamins nach Anspruch 1.

5

10

15

20

25

30

35

40

45

GEÄNDERTES BLATT

22-01-2004